

(19) JAPANESE PATENT OFFICE (JP)

(11) Japanese Unexamined Patent Application
(Kokai) No. 11-140010

(12) Official Gazette for Unexamined Patent Applications (A)

(43) Disclosure Date: 25 May 1999

(51)	Int.Cl. ⁶	Ident. Symbols	FI
C07C	47/544		C07C 47/544
A01N	35/04		A01N 35/04
A61K	31/11	ADB	A61K 31/11 ADB
A61L	2/16		A61K 2/16 Z
C07C	45/86		C07C 45/86

Request for Examination: Not yet requested		Number of Claims: 5	OL	(Total of 8 pages)
(21)	Application No.: 9-308971	(71)	Applicant:	390034348 K I Chemical Company, Ltd. 328 Hamano, Shioshinden, Fukude-cho, Iwata-gun, Shizuoka-ken
(22)	Application Date: 11 November 1997	(72)	Inventor:	Masahiro Morita c/o K I Chemical Company, Ltd. 328 Hamano, Shioshinden, Fukude-cho, Iwata-gun, Shizuoka-ken
		(72)	Inventor:	Katsuhisa Isogai c/o K I Chemical Company, Ltd. 328 Hamano, Shioshinden, Fukude-cho, Iwata-gun, Shizuoka-ken
		(74)	Agent:	Toshizo Iida, Patent Attorney

(54) Title of the Invention: A Stabilized o-Phthalaldehyde Composition

(57) Abstract

[Problem] To provide an o-phthalaldehyde composition that is liquid at normal temperature in which the o-phthalaldehyde is of high stability even at high concentrations and [conditions of] decomposition, polymerization and coloration of which is controlled over time and a solid o-phthalaldehyde composition that can be extracted from a container without producing decomposition, polymerization and coloration during heating and fusion, that completely fuses in a short time and that can easily be prepared as a liquid agent.

[Means of Solution] A stabilized o-phthalaldehyde composition that contains specified quantities of water and aliphatic water-soluble alcohols relative to the o-phthalaldehyde and that has been stabilized.

[Claims]

[Claim 1] A stabilized o-phthalaldehyde composition that contains specified quantities of water and aliphatic water-soluble alcohols relative to the o-phthalaldehyde and that has been stabilized.

[Claim 2] A stabilized o-phthalaldehyde composition as described in Claim 1 characterized in that it contains 1 to 300 parts by weight water and 1 to 500 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol per 100 parts by weight of o-phthalaldehyde composition.

[Claim 3] A stabilized o-phthalaldehyde composition as described in Claim 1 characterized in that it contains 1 to 300 parts by weight water and 50 to 500 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol per 100 parts by weight of o-phthalaldehyde composition.

[Claim 4] A stabilized o-phthalaldehyde composition as described in Claim 1 characterized in that it contains 1 to 20 parts by weight water and 1 to 20 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol per 100 parts by weight of o-phthalaldehyde composition and that it is a solid substance.

[Claim 5] A stabilized o-phthalaldehyde composition as described in Claim 1 characterized in that the 100 parts by weight of o-phthalaldehyde that it contains is dispersed in 5 to 50 parts by weight water and 5 to 50 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol.

[Detailed Description of the Invention]**[0001]**

[Technological Field of the Invention] This invention relates to a stabilized o-phthalaldehyde composition that is useful as a raw material for disinfectants and fungus and seaweed inhibitors for nonmedical use. In greater detail, it relates to a stabilized o-phthalaldehyde solution in which decomposition and coloration are decreased at even high concentrations and that can be stored stably for long periods and to a solid o-phthalaldehyde substance with which a liquid agent can be prepared in which decomposition and coloration are decreased during storage and during heating and fusion, that is of high storage capacity, that is of practical utility and that is easily mixed with solvents.

[0002]

[Prior Art] Because o-phthalaldehyde has excellent antifungal activity, it is useful as a raw material for disinfectants and fungus and seaweed inhibitors for nonmedical use, and, industrially, is supplied by various manufacturing methods in various product forms. For example, there is solid o-phthalaldehyde as an industrial scale product that is obtained by pouring crystalline powder or fractions that have been distilled and purified directly into a packaging container and solidifying them by cooling. However, there are problems with such powdered o-phthalaldehyde in that it does not have sufficient solubility for the targets of fungus and seaweed inhibition during use and that there are deleterious effects on the skin and mucous membranes due to dispersion of powder during operations because of its irritating characteristics and corrosiveness.

[0003] For this reason, it is desirable to prepare these o-phthalaldehydes in high concentration solutions in advance before supplying them. Because the melting point of the o-phthalaldehyde is approximately 56°C and it has a low solubility in water at room temperature of approximately 5 wt%, an organic solvent is ordinarily used when it is prepared in solution. For example, it is indicated in Japanese Patent Application Early Disclosure No. 63-313705 [1988], Japanese Patent Application Early Disclosure No. 6-23368 [1994] and Japanese Patent Application Early Disclosure No. 7-11669 [1995] that alcohols (methanol, ethanol), cresols, esters, ketones and aromatic hydrocarbons are used. However, there are the problems that o-phthalaldehyde is unstable in high concentration solutions and that it decomposes and undergoes polymerization during storage in solutions in which the aforementioned organic solvents are used.

[0004] On the other hand, for example, in Japanese Patent Application Early Disclosure No. 8-302594 [1996] high concentration o-phthalaldehyde solutions that are dissolved in propylene carbonate and the stability of which is increased are described. However, there are the problems that o-phthalaldehyde solutions in which these nonprotonic solvents are used have a pale yellow color during solution preparation, that they are easily colored brown by long-term storage at normal temperature or by heating and that deleterious effects or a decrease in product value is brought about during their use for disinfection and fungus and seaweed inhibition.

[0005] On the other hand, because the components of the aforementioned solid o-phthalaldehyde are of higher stability than those of solution, when it is stored in unaltered form, there is little decrease in component content due to decomposition or polymerization and there are no effects on the human body due to dispersion of powder. For this reason, it is easily handled during storage and transport and is of lower cost than powders and liquids. However, at the time of use, in order to prepare it as a liquid agent, it is necessary to fuse it, extract a fixed quantity from the storage container and to mix it with a solvent and there are problems of workability at this time. Specifically, when a liquid agent is prepared industrially using solid o-phthalaldehyde, at the time o-phthalaldehyde is transferred from its container to a separate container or boiler (or at the time it is separated in smaller portions), it is necessary to heat and fuse it at approximately 56°C or higher and to convert it into a state in which it can be extracted from the container and in which it can be mixed with a solvent. However, a long period of time is required for complete fusion. In addition, when the packaging container is directly heated from the outside, the pale, yellow o-phthalaldehyde may be colored brown or black. (Powdered o-phthalaldehyde also has the property of being similarly colored when it is heated and fused in unaltered form.)

Further, when a nonprotonic solvent is added to solid o-phthalaldehyde and it is heated, similar coloration occurs. Solid o-phthalaldehyde to which an aliphatic alcohol having hydroxyl groups has been added does not readily undergo coloration due to heating and fusion. However, there is the problem that there is marked

decomposition and polymerization of the o-phthalaldehyde.

[0006]

[Problems the Invention is Intended to solve]

Consequently, this invention has the objective of providing a stabilized o-phthalaldehyde composition at normal temperature in which the o-phthalaldehyde is of high stability even at high concentrations and [conditions of] decomposition, polymerization and coloration and which is controlled over time. This invention has the further objective of providing a stabilized solid o-phthalaldehyde composition that can be extracted from a container without producing decomposition, polymerization and coloration during heating and fusion, that completely fuses in a short time and that can easily be prepared as a liquid agent.

[0007]

[Means for solving the problems]

The inventors conducted intensive research in the light of the aforementioned problems. As a result, they discovered that the aforementioned objectives can be achieved stably over a long period without coloration even with a high concentration o-phthalaldehyde solution when water and a water-soluble aliphatic alcohol are used in combination in a specified ratio as the solvent and they arrived at this invention on the basis of this knowledge. Specifically, this invention provides (1) a stabilized o-phthalaldehyde composition that contains specified quantities of water and aliphatic water-soluble alcohols relative to the o-phthalaldehyde, (2) a stabilized o-phthalaldehyde composition as described in item (1) characterized in that it contains 1 to 300 parts by weight water and 1 to 500 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol per 100 parts by weight of o-phthalaldehyde composition, (3) a stabilized o-phthalaldehyde composition as described in item (1) characterized in that it contains 1 to 300 parts by weight water and 50 to 500 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol per 100 parts by weight of o-phthalaldehyde composition, (4) a stabilized o-phthalaldehyde composition as described in item (1) characterized in that it contains 1 to 20 parts by weight water and 1 to 20 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol per 100 parts by weight of o-phthalaldehyde composition and that it is a solid substance and (5) a stabilized o-phthalaldehyde composition as described in item (1) characterized in that 100 parts by weight of o-phthalaldehyde is dispersed in 5 to 50 parts by weight water and 5 to 50 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol.

[0008]

[Mode of execution of the Invention]

The o-phthalaldehyde composition of this invention is characterized in that it contains o-phthalaldehyde, water and a water-soluble aliphatic alcohol. The composition of this invention contains, per 100 parts by weight of o-phthalaldehyde, 1 to 300 parts by weight, preferably, 1 to 100 parts by weight, and, more preferably, 1 to 50 parts by weight, of water and 1 to 500 parts by weight, preferably, 1 to 200 parts by weight, and, more preferably, 1 to 100 parts by weight, of water-soluble aliphatic alcohol. When there is an excessive amount of water (an excessively small quantity of water-soluble aliphatic alcohol), there are cases in which there is the difficulty that the composition rapidly dissolved in the target of

fungus and seaweed inhibition. Further, when there is an excessively large quantity of water-soluble aliphatic alcohol (an excessively small quantity of water), the stability of the o-phthalaldehyde component in the composition is decreased. The composition of this invention is characterized in that the o-phthalaldehyde component is stable for long periods even at high concentrations. The expression high concentration in this invention ordinarily refers to the case in which the o-phthalaldehyde [concentration] in the composition is 20 wt% or higher. The composition of this invention includes solids, solutions and dispersions (suspensions, etc.). When the composition of this invention is a solution, it contains 1 to 300 parts by weight of water and 50 to 500 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol per 100 parts by weight of o-phthalaldehyde. From the standpoints of manufacturing cost and stability transport and storage of o-phthalaldehyde in solution, per 100 parts by weight of o-phthalaldehyde, 50 to 100 parts by weight of water and 0 to 200 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol is desirable and 60 to 80 parts by weight of water and 100 to 150 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol is more desirable. When the composition of this invention is a solid, it contains 1 to 20 parts by weight of water and 1 to 20 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol. From the standpoints of shortening of fusion time, stability, transport, storage and handling of the composition and manufacturing costs, per 100 parts by weight of o-phthalaldehyde, 1 to 10 parts by weight of water and 1 to 10 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol is desirable and 2 to 5 parts by weight of water and 2 to 5 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol is more desirable. For the composition of this invention, there are no limitations on the shape of the solid as long as it is not in powdered form and it may be in such forms as a block, a cylinder (tablet) of flat object. When the composition of this invention is a dispersion (or suspension), it contains, per 100 parts by weight of o-phthalaldehyde, 5 to 50 parts by weight of water and 5 to 50 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol. From the standpoints of stability, handling, transport and storage of the composition, per 100 parts by weight of o-phthalaldehyde, 8 to 40 parts by weight of water and 8 to 40 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol is desirable and 10 to 20 parts by weight of water and 10 to 20 parts by weight of water-soluble aliphatic alcohol is more desirable.

[0009] Preparation of the composition of this invention is performed by directly compounding the aforementioned water and water-soluble aliphatic alcohol with industrially synthesized o-phthalaldehyde. In this case, addition and mixing are performed immediately before the operation of fusing the solidified o-phthalaldehyde in the packaging container. The fusion and mixture temperature should be 60 to 100°C, and, preferably, 70 to 80°C, above the melting point (approximately 56°C) of the o-phthalaldehyde. Mixing can be performed in a constant temperature tank in which each container is externally heated. The water and water-soluble aliphatic alcohol can be added to powdered o-phthalaldehyde and fusion and mixing can be performed in the same way as for the solid form. There are no particular limitations on the shape of the o-phthalaldehyde that is used as the raw material. By adding the water and the water-soluble aliphatic alcohol at the time of fusion and mixing, coloration due to heating

of the o-phthalaldehyde can be prevented. When the composition of this invention is a dispersion, it can be obtained by adding the mixed liquid consisting of water and a water-soluble aliphatic alcohol and o-phthalaldehyde of a higher solubility than that liquid. The state of the o-phthalaldehyde that is used at this time is not limited to powders (crystals) and be obtained by directly adding distillate of o-phthalaldehyde that has been distilled and purified industrially and stirring it mechanically while it is being cooled.

[0010] In this invention, there are no particular limitations on the water and tap water, ion exchange water and distilled water can be used. Ordinarily, water of pH 4 to 8 is used.

[0011] The water-soluble aliphatic alcohol that is used in this invention is, for example, a glycol solvent, a glycol ether solvent or an alcohol solvent. One can be used alone or two or more can be mixed and they can be selected as desired. When the composition of this invention is a solution and it is administered directly to the object of fungus and seaweed inhibition, from the standpoint that homogeneous solutions of low viscosity are desirable, the water-soluble aliphatic alcohol should be a substance of low viscosity that mixes thoroughly with water. However, even when a water soluble aliphatic alcohol of high viscosity or low compatibility with water is used, there is no effect on the stability of the composition of this invention or on prevention of its coloration. It is generally known that chain alcohols undergo a decrease of compatibility with water accompanying an increase of molecular weight. However, in this invention, solvents of this kind of low compatibility with water may be used satisfactorily by using mixed solvents in which other solvents of high compatibility with water such as glycol solvents, glycol ether solvents and lower alcohols are combined. The same is true for viscosity and solvents of high viscosity can be used satisfactorily by employing them in combination with solvents of low viscosity. Thus, when two or more solvents are used in combination in this way, there is no effect on the stability of the composition of this invention or on prevention of its coloration.

[0012] Specific examples of solvents that can be used in this invention are presented here. However, this invention is not limited to them. The alcohol solvents may be glycol of 2 to 5 carbon atoms or polymers thereof and can include, for example, ethylene glycol, diethylene glycol, tetraethylene glycol, polyethylene glycol 200, polyethylene glycol 300, polyethylene glycol 400, polyethylene glycol 600, propylene glycol, dipropylene glycol, polypropylene glycol 400, polypropylene glycol 700, polypropylene glycol 1000, 1,3-propanediol, 1,3-butanediol, 1,4-butanediol, 2,3-butanediol and 1,5-pentadienediol.

[0013] The glycol ether solvent should be a lower alkyl or aryl monoether with a glycol of 2 to 9 carbon atoms, for example, ethylene glycol monomethyl ether, ethylene glycol monoethyl ether, ethylene glycol monobutyl ether, ethylene glycol monoisopropyl ether, ethylene glycol monoisoamyl ether, ethylene glycol monohexyl ether, ethylene glycol monophenyl ether, ethylene glycol monobenzyl ether, diethylene glycol monomethyl ether, diethylene glycol monoethyl ether, diethylene glycol monobutyl ether, triethylene glycol

monomethyl ether, propylene glycol monomethyl ether, propylene glycol monoethyl ether, dipropylene glycol monomethyl ether, dipropylene glycol monoethyl ether and tripropylene glycol monomethyl ether.

[0014] The alcohol solvents should have 1 to 8 carbon atoms and may be cyclic or chain and straight chain or branched chain. The cyclic alcohols may also have hetero-atoms. Specifically, they may include, for example, methanol, ethanol, 1-propanol, 2-propanol, 1-butanol, 2-butanol, isobutyl alcohol, 2-methyl-2-propanol, 1-pentanol, 2-pentanol, 3-pentanol, 2-methyl-1-butanol, 2-methyl-2-butanol, 3-methyl-2-butanol, isopentyl alcohol, 2,2-dimethyl-1-propanol, 1-hexanol, 2-methyl-1-pentanol, 4-methyl-2-pentanol, 2-ethyl-1-butanol, 1-heptanol, 2-heptanol, 3-heptanol, 1-octanol, 2-octanol, 2-ethyl-1-hexanol, furfuryl alcohol and tetrahydrofurfuryl alcohol.

[0015] The water-soluble aliphatic alcohol that is used in this invention is at least one alcohol selected from polyethylene glycol 200, polypropylene glycol 400, diethylene glycol monomethyl ether, diethylene glycol monoethyl ether, ethylene glycol monomethyl ether and ethylene glycol monoethyl ether. The use of these substances is desirable from the standpoints of the stability and viscosity of the composition, the degree of freedom of composition (concentration), solvent cost and low volatility.

[0016] The stabilized o-phthalaldehyde composition of this invention has high long-term storage stability and can prevent decomposition, polymerization and coloration of the o-phthalaldehyde component in heating and fusing operations. In the stabilized, solid o-phthalaldehyde composition of this invention, the time required for complete fusion can be shortened, operating efficiency can be greatly increased and working safety can be assured. When a liquid agent is prepared using the solid composition of this invention, the water and water-soluble aliphatic alcohol are added and fusion and mixing are performed. Even if the agent is cooled to normal temperature, a stable o-phthalaldehyde high concentration solution can be made without resolidification occurring.

[0017]

[Examples] Next, we shall describe this invention in further detail on the basis of examples.

Examples 1 to 38 and Comparative Examples 1 to 13

o-Phthalaldehyde, water and various organic solvents were mixed in the compounding ratios shown in Tables 1 to 6 and stirred, with solution (Examples 1 to 28, Comparative Examples 1 to 8) or solid (Examples 29 to 38, Comparative Examples 9-13) o-phthalaldehyde compositions being obtained. In Examples 1 to 28 and Comparative Examples 1 to 8, powdered o-phthalaldehyde (manufactured by Union Carbide) was used, in Examples 29 to 33 and Comparative Examples 9 to 11, a distillate obtained by distilling and refining o-phthalaldehyde was used, and, in Examples 34 to 38 and Comparative Examples 12 to 13, 80 kg of solid o-phthalaldehyde (manufactured by Ihara Nikkei Chemical Industrial Company) packed in a 100 liter capacity iron drum with a polyethylene interior was used.

(2) Examples 29 to 33 and Comparative Examples 9 to 11 (solid o-phthalaldehyde

20 g of each solid o-phthalaldehyde sample obtained in Examples 29 to 33 and Comparative Examples 9 to 11 were collected in glass containers, the containers were stoppered and were allowed to stand for 1 week in a constant temperature tank at 80°C. The remaining o-phthalaldehyde was analyzed by gas chromatography and the residual ratio of o-phthalaldehyde was found. The degree of coloration of each test material after standing for 1 week was determined visually using the Gardner color scale. (The Gardner color scale of the solid o-phthalaldehyde samples immediately after preparation was 7). The results are shown in Table 5.

(3) Examples 34 to 38 and Comparative Examples 12 and 13 (solid o-phthalaldehyde)

The solid o-phthalaldehyde samples obtained in Examples 34 to 38 and Comparative Examples 12 and 13 were housed in a constant temperature tank in which each container was an air bath heating system set to 75°C and determinations were made of the number of days until the solid o-phthalaldehyde had completely fused and of the residual quantity of o-phthalaldehyde at the time fusion was concluded. The degree of coloration of the fused o-phthalaldehyde was determined visually using the Gardner color scale. The results are shown in Table 6.

[Table 1]

[illegible]

[0022]

[Table 4]

Table 4

No.		Example 22	Example 23	Example 24	Example 25	Example 26	Example 27	Example 28	Comparative Example 7	Comparative Example 8	
Composition (parts by weight)	o-phthalaldehyde	40	40	40	40	40	40	40	40	40	
	Water	0.5	1	2.5	5	10	20	25			
	Organic solvents	ethylene glycol monomethyl ether 1-octanol	49.5 10	49 10	47.5 10	48 07	45 5	38 2	33 2	50 10	
		N,N-dimethylacetamide									60
	Totals		100	100	100	100	100	100	100	100	100
o-phthalaldehyde residual ratio (%)		65	88	90	94	97	98	98	31	98	
Gardner color scale		4	4	4	4	4	4	4	7	14	

[0023]

[Table 5]

Table 5

No.		Example 29	Example 30	Example 31	Example 32	Example 33	Comparative Example 9	Comparative Example 10	Comparative Example 11
Composition (parts by weight)	o-phthalaldehyde	98	97	94	94	80	100	95	95
	Water	4	2	1	5	10		5	
	Organic solvents	diethylene glycol monomethyl ether polyethylene glycol 200 2-propanol ethylene glycol monomethyl ether N-methyl-2-pyrrolidinone	1	5	1	10			5
	Totals	100	100	100	100	100	100	100	100
o-phthalaldehyde residual ratio (%)		98	>99	>99	>99	>99	90	92	75
Gardner color scale		7	7	7	7	7	17	11	8

[0024]

[Table 6]

Table 6

No.		Example 34	Example 35	Example 36	Example 37	Example 38	Comparative Example 12	Comparative Example 13
Composition (kg)	o-phthalaldehyde	80	80	80	80	80	80	80
	Water	1	2	3	4	4		
	Organic solvents							
	diethylene glycol monomethyl ether polyethylene glycol 200 2-propanol ethylene glycol monomethyl ether N-methyl-2-pyrrolidinone	3	2	1	2	4		5
	N-methyl-2-pyrrolidinone Dimethyl sulfoxide Propylene carbonate							
	Totals	84	84	84	86	88	80	85
o-phthalaldehyde residual ratio (%)		>99	>99	>99	>99	>99	83	62
Gardner color scale		8	7	7	7	7	16	9
Number of days up to fusion (days)		3	3	3	3	3	7	5

(Note) ">99" indicates exceeding 99.

[0025] From the results in Tables 1 to 4, it can be seen that the o-phthalaldehyde solutions of this invention in Examples 1 to 28 exhibiting high residual ratios of o-phthalaldehyde did not undergo coloration even when allowed to stand for 6 weeks at 50°C. It was found that even 40 wt% high concentration solutions were stable and were solutions that could be stored for long periods. By contrast, in Comparative Examples 1, 3, 5 and 7, in which only water-soluble aliphatic alcohols were used as solvents, the residual ratios of o-phthalaldehyde were markedly low and coloration was seen. In Comparative Examples 2, 4, 6 and 8, in which nonprotic solvents were used, the residual ratios of o-phthalaldehyde were high but coloration of the solutions was marked. Examples 22 to 28 in Table 4 are examples in which a mixed solution of ethylene glycol monomethyl ether and 1-octanol was used as the water-soluble aliphatic alcohol. Further, from the results shown in Table 5, it can be seen that the solid o-phthalaldehyde compositions of this invention obtained in Examples 29 to 33 showed a marked decrease in o-phthalaldehyde content decrease and did not undergo coloration as a result of storage. In Comparative Example 9, in which only o-phthalaldehyde was used and in Comparative Example 10 in which only water was used, the o-phthalaldehyde residual ratio was low and coloration was marked. In Comparative Example 11, in which only ethylene glycol monomethyl ether was used, the o-phthalaldehyde residual ratio was markedly low. Further, as should be clear from Table 6, there was no decomposition of o-phthalaldehyde due to heating and fusion in the solid o-phthalaldehyde compositions of this

invention obtained in Examples 34 to 38, with almost no coloration being seen during heating and fusion. In addition, the number of days up to complete fusion was extremely shortened to 3 days in contrast to the 7 days in Experimental Example 12 in which only o-phthalaldehyde was used.

[0026]

[Effect of the Invention] The o-phthalaldehyde component content in the stabilized o-phthalaldehyde composition of this invention does not decrease due to decomposition or polymerization even as a result of long-term storage or heating and fusion operations, and, moreover, undergoes essentially no coloration over time or due to heating. Consequently, it can be stored stably for long periods in a form that is easily handled and there is no decrease in product value due to coloration. Further, by means of the stabilized, solid o-phthalaldehyde composition of this invention, the time required for heating and fusion can be shortened, operating efficiency can be increased and dispersion of powder is prevented, thereby assuring operational safety. Moreover, the stabilized liquid o-phthalaldehyde composition of this invention is stable for long periods even at high concentrations, there are no deleterious effects on the human body due to powder dispersion, and preparations and dilution with other components are easily done and it can be supplied in a form of excellent handling characteristics.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-140010

(43) 公開日 平成11年(1999) 5月25日

(51) Int.Cl.⁶

識別記号

F I

C 0 7 C 47/544

C 0 7 C 47/544

A 0 1 N 35/04

A 0 1 N 35/04

A 6 1 K 31/11

A D B

A 6 1 K 31/11

A D B

A 6 1 L 2/16

A 6 1 L 2/16

Z

C 0 7 C 45/86

C 0 7 C 45/86

審査請求 未請求 請求項の数5 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号

特願平9-308971

(22) 出願日

平成9年(1997)11月11日

(71) 出願人 390034348

ケイ・アイ化成株式会社

静岡県磐田郡福田町塩新田浜野328

(72) 発明者 森田 昌宏

静岡県磐田郡福田町塩新田浜野328番地

ケイ・アイ化成株式会社内

(72) 発明者 磯貝 勝久

静岡県磐田郡福田町塩新田浜野328番地

ケイ・アイ化成株式会社内

(74) 代理人 弁理士 飯田 敏三

(54) 【発明の名称】 オルトフタルアルデヒド安定化組成物

(57) 【要約】

【課題】 高濃度でもオルトフタルアルデヒドの安定性が高く、経時による分解、重合と着色が抑制された、常温で液状のオルトフタルアルデヒド組成物、及び加熱溶解時の分解、重合と着色を生ずることなく容器から取り出すことができ、また、短時間で完全に溶解し、容易に液剤等に調製しうる固形状のオルトフタルアルデヒド組成物を提供する。

【解決手段】 オルトフタルアルデヒドに対し、所定量の水及び水溶性脂肪族アルコールを含有させてなる安定化されたオルトフタルアルデヒド安定化組成物。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 オルトフタルアルデヒドに対し、所定量の水及び水溶性脂肪族アルコールを含有させてなることを特徴とするオルトフタルアルデヒド安定化組成物。

【請求項2】 オルトフタルアルデヒド100重量部に対し、水1～300重量部及び水溶性脂肪族アルコール1～500重量部を含有させてなることを特徴とする請求項1記載のオルトフタルアルデヒド安定化組成物。

【請求項3】 オルトフタルアルデヒド100重量部に対し、水1～300重量部及び水溶性脂肪族アルコール50～500重量部を含有させてなり、溶液であることを特徴とする請求項1記載のオルトフタルアルデヒド安定化組成物。

【請求項4】 オルトフタルアルデヒド100重量部に対し、水1～20重量部及び水溶性脂肪族アルコール1～20重量部を含有させてなり、固形物であることを特徴とする請求項1記載のオルトフタルアルデヒド安定化組成物。

【請求項5】 オルトフタルアルデヒド100重量部を水5～50重量部及び水溶性脂肪族アルコール5～50重量部に分散させてなることを特徴とする請求項1記載のオルトフタルアルデヒド安定化組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、消毒薬や非医療用の防菌防藻剤の原料として有用なオルトフタルアルデヒド安定化組成物に関する。さらに詳しくは、高濃度でも分解や着色が低減され、長期間安定に保管できるオルトフタルアルデヒド安定化溶液、及び保存しないしは加熱溶解時の分解や着色が低減され、保存性が高く、溶解させて容易に溶剤等と混合して液剤を調製できるオルトフタルアルデヒド固形物に関する。

【0002】

【従来の技術】オルトフタルアルデヒドは殺菌力が優れているため、消毒薬や非医療用の防菌防藻剤の原料として有用であり、工業的には種々の製造法及び製品形態で供給されている。例えば、工業規模の製品形態としては、結晶性の粉末や、蒸留精製された留分を直接包装容器に流し込み冷却固化した固形状のオルトフタルアルデヒドがある。しかし、この粉末のオルトフタルアルデヒドの場合、使用時に防菌防藻対象への溶解性が十分でないことや、刺激性、腐食性があるため作業時の粉立ちによって皮膚や粘膜などに悪影響があることなどの問題がある。

【0003】そのため、これらのオルトフタルアルデヒドは予め高濃度溶液に調製して供給されるのが好ましいが、オルトフタルアルデヒドの融点は約56℃であることと、室温での水への溶解度が約5重量%と低いことから、通常、溶液に調製する際には有機溶剤が用いられる。例えば特開昭63-313705号、特開平6-2

3368号及び特開平7-116669号にはアルコール類（メタノール、エタノール）、グリコール類、エステル類、ケトン類、芳香族炭化水素類を使用することが記載されている。しかし、オルトフタルアルデヒドは高濃度溶液では不安定であり、上記の有機溶剤を用いた溶液では保存中に分解、重合してしまうという問題がある。

【0004】一方、例えば特開平8-302594号には、炭酸プロピレンに溶解させ、安定性を向上させた、オルトフタルアルデヒド高濃度溶液が記載されている。しかし、このような非プロトン性溶媒を用いたオルトフタルアルデヒド溶液は、溶液調製時には淡黄色であったものが、長期常温保存又は加熱によって容易に褐色に着色し、消毒や防菌防藻用途での悪影響や商品価値の低下を引き起こすという問題があった。

【0005】一方、上記の固形状オルトフタルアルデヒドは、溶液よりも成分の安定性は高いのでそのまま保管すれば分解、重合による成分含量の低下は少なく、粉立ちによる人体への影響もない。そのため、保管、運搬時の取り扱いが容易であり、粉状、液状より低コストであるが、使用に際して液剤に調製するためには溶解して包装容器から所定量を取り出し、溶剤等と混合する必要がある。この際の作業性などに問題がある。すなわち、固形状のオルトフタルアルデヒドを用いて工業的に液剤を調製する場合には、オルトフタルアルデヒドを容器から別の容器や釜に移す際（あるいは小分けする際）などに融点である約56℃以上に加熱して溶解し、容器から取り出すことができ溶剤等と混合できる状態にする必要がある。しかし、完全に溶解するまでに長時間を要する。また、この加熱の際に包装容器ごと直接外部加熱すると、淡黄色のオルトフタルアルデヒドが褐色もしくは黒色に着色してしまう。（粉状のオルトフタルアルデヒドも、そのまま加熱溶解すると同様に着色する性質を有する。）

また、固形状のオルトフタルアルデヒドに非プロトン性溶剤を添加して加熱する場合も同様の着色が起こり、水酸基を有する脂肪族アルコールを添加した固形状オルトフタルアルデヒドは加熱溶解によって着色しにくい、オルトフタルアルデヒドの成分の分解、重合が著しいという問題があった。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】したがって本発明は、高濃度でもオルトフタルアルデヒドの安定性が高く、経時による分解、重合と着色が抑制された、常温で液状のオルトフタルアルデヒド安定化組成物を提供することを目的とする。さらに本発明は、加熱溶解時の分解、重合と着色を生ずることなく容器から取り出すことができ、また、短時間で完全に溶解し、容易に液剤等に調製する固形状のオルトフタルアルデヒド安定化組成物を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは上記課題に鑑み鋭意研究した結果、溶剤として水と水溶性脂肪族アルコールを所定比率で組み合わせて用いると高濃度のオルトフタルアルデヒド溶液としても長期間安定で着色が発生せず、上記目的を達成しうることを見出し、この知見に基づき本発明をなすに至った。すなわち本発明は、

(1) オルトフタルアルデヒドに対し、所定量の水及び水溶性脂肪族アルコールを含有させてなることを特徴とするオルトフタルアルデヒド安定化組成物、(2) オルトフタルアルデヒド100重量部に対し、水1~300重量部及び水溶性脂肪族アルコール1~500重量部を含有させてなることを特徴とする(1)項記載のオルトフタルアルデヒド安定化組成物、(3) オルトフタルアルデヒド100重量部に対し、水1~300重量部及び水溶性脂肪族アルコール50~500重量部を含有させてなり、溶液であることを特徴とする(1)項記載のオルトフタルアルデヒド安定化組成物、(4) オルトフタルアルデヒド100重量部に対し、水1~20重量部及び水溶性脂肪族アルコール1~20重量部を含有させてなり、固形物であることを特徴とする(1)項記載のオルトフタルアルデヒド安定化組成物、及び(5) オルトフタルアルデヒド100重量部を水5~50重量部及び水溶性脂肪族アルコール5~50重量部に分散させてなることを特徴とする(1)項記載のオルトフタルアルデヒド安定化組成物を提供するものである。

【0008】

【発明の実施の形態】本発明のオルトフタルアルデヒド組成物は、オルトフタルアルデヒド、水及び水溶性脂肪族アルコールを含んでなることを特徴とする。本発明の組成物は、オルトフタルアルデヒド100重量部に対し、水1~300重量部、好ましくは1~100重量部、さらに好ましくは1~50重量部、及び水溶性脂肪族アルコール1~500重量部、好ましくは1~200重量部、さらに好ましくは1~100重量部を含んでなる。水が多すぎる(水溶性脂肪族アルコールが少なすぎる)と防菌防藻対象に組成物を速やかに溶解することが困難な場合がある。また、水溶性脂肪族アルコールが多すぎる(水が少なすぎる)と組成物中のオルトフタルアルデヒド成分の安定性が低下する。本発明の組成物は、高濃度でもオルトフタルアルデヒド成分が長期間安定であることを特徴とする。本発明において高濃度とは、通常、組成物中、オルトフタルアルデヒドが20重量%以上の場合をいう。本発明の組成物には、固形物、溶液、分散物(懸濁物など)が含まれる。本発明の組成物が溶液の場合には、オルトフタルアルデヒド100重量部に対し、水1~300重量部、及び水溶性脂肪族アルコール50~500重量部を含んでなる。製造コストや溶液中のオルトフタルアルデヒドの安定性、運搬、保管などの観点からはオルトフタルアルデヒド100重量部に対

し、水50~100重量部、水溶性脂肪族アルコール70~200重量部が好ましく、水60~80重量部、水溶性脂肪族アルコール100~150重量部がさらに好ましい。本発明の組成物が固形物の場合には、オルトフタルアルデヒド100重量部に対し、水1~20重量部、及び水溶性脂肪族アルコール1~20重量部を含んでなる。溶融時間の短縮、組成物の安定性、運搬、保管、取扱いや製造コストの点ではオルトフタルアルデヒド100重量部に対し、水1~10重量部、水溶性脂肪族アルコール1~10重量部が好ましく、水2~5重量部、水溶性脂肪族アルコール2~5重量部がさらに好ましい。本発明の組成物において、粉末状でない限りは固形物の形状は制限はなく、塊状、円柱状(タブレット)、平板状などどのような形でもよい。本発明の組成物が分散物(好ましくは懸濁物)の場合には、オルトフタルアルデヒド100重量部に対し、水5~50重量部、及び水溶性脂肪族アルコール5~50重量部を含んでなる。組成物の安定性、取扱い、運搬、保管などの点ではオルトフタルアルデヒド100重量部に対し、水8~40重量部、及び水溶性脂肪族アルコール8~40重量部が好ましく、水10~20重量部、及び水溶性脂肪族アルコール10~20重量部がさらに好ましい。

【0009】本発明の組成物の調製は、上記の水及び水溶性脂肪族アルコールを、工業的に合成された溶融状態のオルトフタルアルデヒドに直接配合して行うことができる。この場合、包装容器内に固化されているオルトフタルアルデヒドの溶融操作直前に加え、混合することもできる。溶融、混合温度はオルトフタルアルデヒドの融点(約56℃)以上、好ましくは60~100℃、より好ましくは70~80℃であり、恒温槽内で容器ごと外部加熱するなどして混合することができる。また、粉末のオルトフタルアルデヒドに水及び水溶性脂肪族アルコールを加えて固形状のものと同様に溶融、混合することもでき、原料として用いるオルトフタルアルデヒドの形状には特に制限はない。溶融、混合時に水及び水溶性脂肪族アルコールを加えることで、オルトフタルアルデヒドの加熱による着色が阻止できる。本発明の組成物を分散物とする場合、水及び水溶性脂肪族アルコールの混合液体と、その溶解度以上のオルトフタルアルデヒドを添加して得られる。このとき使用するオルトフタルアルデヒドの形態は粉末(結晶)に限らず、工業的に蒸留精製されたオルトフタルアルデヒドの留分を直接添加し、徐冷しながら機械的に攪拌することによっても得ることができる。

【0010】本発明において水は、水道水、イオン交換水、蒸留水などを特に制限なく用いることができ、通常、pH4~8の水を用いる。

【0011】本発明において用いることのできる水溶性脂肪族アルコールとしては、例えばグリコール系溶剤、グリコールエーテル系溶剤、アルコール系溶剤などがあ

げられ、1種単独でも2種以上を混合してもよく、任意に選択して用いることができる。本発明の組成物が溶液であり、防菌防藻対象等に直接投入される場合には均質で低粘度の溶液であることが好ましいという点から、水溶性脂肪族アルコールとしては低粘度で、かつ水と十分混和するものを用いるのが好ましいが、高粘度あるいは水との相溶性が低い水溶性脂肪族アルコールを用いても本発明の組成物の安定性や着色の防止には影響はない。また、鎖状アルコール類は、分子量の増加に伴い水との相溶性が低下することが一般的に知られているが、本発明においては、グリコール系溶剤、グリコールエーテル系溶剤、低級アルコール類など水との相溶性の高い他の溶剤と組み合わせた混合溶剤を水溶性脂肪族アルコールとして用いることにより、このような水との相溶性の低い溶剤も良好に用いることができる。粘度についても同様で、低粘度の他の溶剤と組み合わせて用いることで高粘度の溶剤も良好に使用できる。このように2種以上の溶剤を組み合わせて用いても本発明の組成物の安定性や着色の防止には影響はない。

【0012】以下に本発明に用いることのできる溶剤の具体例をあげるが、本発明はこれに限定されるものではない。グリコール系溶剤としては、炭素数2～5のグリコール又はその重合体が好ましく、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ポリエチレングリコール200、ポリエチレングリコール300、ポリエチレングリコール400、ポリエチレングリコール600、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、ポリプロピレングリコール400、ポリプロピレングリコール700、ポリプロピレングリコール1000、1,3-プロパンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、2,3-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオールを用いることができる。

【0013】グリコールエーテル系溶剤としては、炭素数2～9のグリコールと低級アルキル又はアリールとのモノエーテルが好ましく、例えば、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、エチレングリコールモノイソプロピルエーテル、エチレングリコールモノイソアミルエーテル、エチレングリコールモノヘキシルエーテル、エチレングリコールモノフェニルエーテル、エチレングリコールモノベンジルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコールモノブチルエーテル、トリエチレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、ジプロピレングリコールモノエチルエーテル、トリプロピレングリコールモノメチルエーテルがあげられる。

【0014】また、アルコール系溶剤としては、炭素数1～8のものが好ましく、環状でも鎖状でもよく、直鎖又は分岐のいずれでもよい。また、環状アルコールはヘテロ原子を有するものであってもよい。具体的には例えば、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、1-ブタノール、2-ブタノール、イソブチルアルコール、2-メチル-2-プロパノール、1-ペンタノール、2-ペンタノール、3-ペンタノール、2-メチル-1-ブタノール、2-メチル-2-ブタノール、3-メチル-2-ブタノール、イソペンチルアルコール、2,2-ジメチル-1-プロパノール、1-ヘキサノール、2-メチル-1-ペンタノール、4-メチル-2-ペンタノール、2-エチル-1-ブタノール、1-ヘプタノール、2-ヘプタノール、3-ヘプタノール、1-オクタノール、2-オクタノール、2-エチル-1-ヘキサノール、フルフリルアルコール、テトラヒドロフルフリルアルコールがあげられる。

【0015】本発明において水溶性脂肪族アルコールとして、ポリエチレングリコール200、ポリプロピレングリコール400、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノメチルエーテル及びエチレングリコールモノエチルエーテルから選ばれる少なくとも1種を用いるのが、組成物の安定性及び粘度、組成（濃度）の自由度、溶剤コスト、低揮発性の点から好ましい。

【0016】本発明のオルトフタルアルデヒド安定化組成物は、長期保存安定性が高く、加熱溶解操作でのオルトフタルアルデヒド成分の分解、重合と着色が防止できる。さらに、本発明の固形状のオルトフタルアルデヒド安定化組成物においては、完全に溶解するのに要する時間を短縮でき、作業効率を大幅に向上でき、作業の安全性も確保できる。なお、本発明の固形状の組成物を用いて液剤を調製する場合、上記した水及び水溶性脂肪族アルコールをさらに加えて溶解、混合を行って、常温まで冷却しても再固化しない本発明の安定したオルトフタルアルデヒド高濃度溶液とすることができる。

【0017】

【実施例】次に、本発明を実施例に基づいてさらに詳細に説明する。

実施例1～38、比較例1～13

表1～6に示した配合比でオルトフタルアルデヒド、水及び各有機溶剤を混合、攪拌し、溶液（実施例1～28、比較例1～8）又は固形状（実施例29～38、比較例9～13）のオルトフタルアルデヒド組成物を得た。なお、実施例1～28及び比較例1～8については粉末オルトフタルアルデヒド（ユニオンカーバイド社製）、実施例29～33及び比較例9～11についてはオルトフタルアルデヒドを蒸留精製した留分、実施例34～38及び比較例12、13については荷姿が100リットル容のポリエチレン内装鉄ドラムに包装された8

0kg 詰めの固形オルトフタルアルデヒド（イハラニッケイ化学工業社製）を用いた。

【0018】得られた各オルトフタルアルデヒド組成物について、下記の測定、試験を行った。結果を表1～6に示した。

①実施例1～28及び比較例1～8（オルトフタルアルデヒド溶液）について

実施例1～28及び比較例1～8で得られたオルトフタルアルデヒド溶液各50gをガラス容器に取り、密栓して50℃の恒温槽に6週間静置した。残存したオルトフタルアルデヒドをガスクロマトグラフィーで分析し、オルトフタルアルデヒド残存率を求めた。また、各試料50gをガラス容器に取り、密栓して80℃の恒温槽に1週間静置した後の各試料の着色度を、ガードナー色数として目視で測定した。（なお、調製直後のオルトフタルアルデヒド溶液のガードナー色数は4である。）結果を表1～4に示した。

②実施例29～33及び比較例9～11（オルトフタルアルデヒド固形物）について

実施例29～33及び比較例9～11で得られたオルト

フタルアルデヒド固形物各20gをガラス容器に取り、密栓して80℃の恒温槽に1週間静置した。残存したオルトフタルアルデヒドをガスクロマトグラフィーで分析し、オルトフタルアルデヒド残存率を求めた。また、1週間静置後の各試料の着色度を、ガードナー色数として目視で測定した。（なお、調製直後のオルトフタルアルデヒド固形物のガードナー色数は7である。）結果を表5に示した。

③実施例34～38及び比較例12、13（オルトフタルアルデヒド固形物）について

実施例34～38及び比較例12、13で得られたオルトフタルアルデヒド固形物を、容器ごと空気浴加熱方式の75℃に調製された恒温槽に収納し、固形のオルトフタルアルデヒドが完全に溶解するまでの日数と、溶解終了時におけるオルトフタルアルデヒド残存量を測定した。また、溶解したオルトフタルアルデヒドの着色度をガードナー色数として目視で測定した。結果を表6に示した。

【0019】

【表1】

No.		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	比較例1	比較例2
組成（重量部）	オルトフタルアルデヒド	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	水	0.5	1	2.5	5	10	20	30		
	エチレングリコールモノメチルエーテル	59.5	59	57.5	55	50	40	30	60	
	エチレングリコール200									
	2-プロパノール									
有機溶剤	エチレングリコールモノメチルエーテル									
	メチルセロソルベート									60
合計		100	100	100	100	100	100	100	100	100
オルトフタルアルデヒド 残存率 (%)		58	81	87	92	95	97	98	35	98
ガードナー色数		4	4	4	4	4	4	4	7	15

【0020】

【表2】

表2

No.		実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	比較例8	比較例4
組成 (重量部)	イソフタル酸ジブチル	30	30	30	30	30	30	30	30	30
	水	0.5	1	2.5	5	10	20	45		
	ジエチレンジグリコール モノブチルエーテル ジエチレンジグリコール-200 2-プロパノール エチレンジグリコール モノブチルエーテル	69.5	69	67.5	65	60	50	25	70	
	N-ブチル-2-ピロリドン ジメチルアセチルアセト 炭酸プロピル									70
	合計	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	イソフタル酸ジブチル 残存率 (%)	53	75	85	93	97	98	97	40	98
ガードナー色数		4	4	4	4	4	4	4	6	16

【0021】

【表3】

表3

No.		実施例15	実施例16	実施例17	実施例18	実施例19	実施例20	実施例21	比較例5	比較例6
組成 (重量部)	イソフタル酸ジブチル	20	20	20	20	20	20	20	20	20
	水	0.5	1	2.5	5	10	20	50		
	ジエチレンジグリコール モノブチルエーテル ジエチレンジグリコール-200 2-プロパノール エチレンジグリコール モノブチルエーテル	79.5	79	77.5	75	70	60	30	80	
	N-ブチル-2-ピロリドン ジメチルアセチルアセト 炭酸プロピル									80
	合計	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	イソフタル酸ジブチル 残存率 (%)	61	73	84	90	95	98	97	48	98
ガードナー色数		4	4	4	4	4	4	4	6	15

【0022】

【表4】

表4

No.		実施例22	実施例23	実施例24	実施例25	実施例26	実施例27	実施例28	比較例7	比較例8
組成 (重量部)	オキソフタル酸ジエチル	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	水	0.5	1	2.5	5	10	20	25		
	有機溶剤									
	エチレングリコール モノメタセーテラ 1-イソノール	49.5 10	49 10	47.5 10	48 7	45 5	38 2	33 2	50 10	
	凡そ-ブチルアセテート									60
合計		100	100	100	100	100	100	100	100	100
オキソフタル酸ジエチル 残存率 (%)		65	88	90	94	97	98	98	31	98
ガードナー色数		4	4	4	4	4	4	4	7	14

【0023】

【表5】

表5

No.		実施例29	実施例30	実施例31	実施例32	実施例33	比較例9	比較例10	比較例11
組成 (重量部)	オキソフタル酸ジエチル	98	97	94	94	80	100	95	95
	水	1	2	1	5	10		5	
	有機溶剤								
	エチレングリコール モノメタセーテラ 2-プロパノール エチレングリコール モノメタセーテラ	1	1	5	1	10			5
	N-メチル-2-ピロリドン ジメチルホルムアミド 炭酸プロピレン								
合計		100	100	100	100	100	100	100	100
オキソフタル酸ジエチル 残存率 (%)		98	>99	>99	>99	>99	90	92	75
ガードナー色数		7	7	7	7	7	17	11	8

(注) 「>99」は99を越えたことを示す。

【0024】

【表6】

表6

No.		実施例34	実施例35	実施例36	実施例37	実施例38	比較例12	比較例13
組成 (kg)	オルトフタルアルデヒド	80	80	80	80	80	80	80
	水	1	2	3	4	4		
	有機溶剤 エチレングリコールモノメチルエーテル ジエチレングリコール200 2-プロパノール エチレングリコール モノメチルエーテル	3	2	1	2	4		5
	ヒ-メチル-2-ピロリジン ジメチルアミン 炭酸プロピル							
	合計	84	84	84	88	88	80	85
オルトフタルアルデヒド 残存率 (%)		>99	>99	>99	>99	>99	83	62
ガードナー色数		6	7	7	7	7	16	9
溶解までの日数 (日)		3	3	3	3	3	7	5

(注) 「>99」は99を越えたことを示す。

【0025】表1～4の結果より、実施例1～28の本発明のオルトフタルアルデヒド溶液は、50℃で6週間静置してもオルトフタルアルデヒドの残存率が高く、着色もない。40重量%の高濃度の溶液でも安定で長期保存の可能な溶液であることがわかる。これに対し、溶剤に水溶性脂肪族アルコールのみを用いた比較例1、3、5、7はオルトフタルアルデヒドの残存率が著しく低く、着色もみられる。非プロトン性溶剤のみを用いた比較例2、4、6、8ではオルトフタルアルデヒドの残存率は高いものの、溶液の着色が著しかった。表4の実施例22～28は、エチレングリコールモノメチルエーテルと1-オクタノールの混合溶剤を水溶性脂肪族アルコールとして用いた例である。また、表5の結果より、実施例29～33で得られた本発明の固形状のオルトフタルアルデヒド組成物は、保存によるオルトフタルアルデヒド成分量の低下が著しく低減され、着色もない。オルトフタルアルデヒドのみの比較例9及び水のみを用いた比較例10はオルトフタルアルデヒド残存率が低く着色が著しい。エチレングリコールモノメチルエーテルのみを用いた比較例11はオルトフタルアルデヒド残存率が著しく低い。さらに、表6より明らかなように、実施例

34～38で得られた本発明の固形状のオルトフタルアルデヒド組成物は、加熱溶解によるオルトフタルアルデヒドの分解がなく、加熱溶解時の着色もほとんどない。また、完全に溶解するまでの日数も、オルトフタルアルデヒドのみの比較例12が7日であるのに対して3日と非常に短縮されている。

【0026】

【発明の効果】本発明のオルトフタルアルデヒド安定化組成物は、長期の保存や加熱溶解操作によっても組成物中のオルトフタルアルデヒド成分含量が分解、重合によって低下せず、かつ、経時や加熱による着色もほとんどない。したがって、取り扱いやすい形状で長期間、安定に保存でき、着色による商品価値の低下も生じない。また、本発明の固形状のオルトフタルアルデヒド安定化組成物によれば、加熱溶解に要する時間を短縮でき、作業効率が向上でき、粉立ちを防いで作業の安全性を確保できる。さらに、本発明の溶液状のオルトフタルアルデヒド安定化組成物は高濃度でも長期間安定であり、粉立ちによる人体への悪影響がなく、他の成分との調剤、希釈も極めて容易であり、取扱い性の優れる形態での供給を可能とする。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.